

P C T


国際予備審査報告

(法第12条、法施行規則第56条)
〔PCT36条及びPCT規則70〕

REC'D 15 JAN 2004

出願人又は代理人 の書類記号 NEC03P025	今後の手続きについては、国際予備審査報告の送付通知(様式PCT/ IPEA/416)を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JP03/07594	国際出願日 (日.月.年) 16.06.03	優先日 (日.月.年) 17.06.02
国際特許分類(IPC) Int. Cl ⁷ C08G85/00 C08J5/00 C08L101/16 // C08L101:00		
出願人(氏名又は名称) 日本電気株式会社		

1. 国際予備審査機関が作成したこの国際予備審査報告を法施行規則第57条(PCT36条)の規定に従い送付する。
2. この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で <u>4</u> ページからなる。 <input checked="" type="checkbox"/> この国際予備審査報告には、附属書類、つまり補正されて、この報告の基礎とされた及び/又はこの国際予備審査機関に対してした訂正を含む明細書、請求の範囲及び/又は図面も添付されている。 (PCT規則70.16及びPCT実施細則第607号参照) この附属書類は、全部で <u>10</u> ページである。
3. この国際予備審査報告は、次の内容を含む。 I <input checked="" type="checkbox"/> 国際予備審査報告の基礎 II <input type="checkbox"/> 優先権 III <input type="checkbox"/> 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成 IV <input type="checkbox"/> 発明の単一性の欠如 V <input checked="" type="checkbox"/> PCT35条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明 VI <input type="checkbox"/> ある種の引用文献 VII <input type="checkbox"/> 国際出願の不備 VIII <input type="checkbox"/> 国際出願に対する意見

国際予備審査の請求書を受理した日 16.06.03	国際予備審査報告を作成した日 17.12.03	
名称及びあて先 日本国特許庁(IPEA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官(権限のある職員) 天野 宏樹 	4 J 9 2 7 2
電話番号 03-3581-1101 内線 3456		

I. 国際予備審査報告の基礎

1. この国際予備審査報告は下記の出願書類に基づいて作成された。(法第6条(PCT 14条)の規定に基づく命令に
応答するために提出された差し替え用紙は、この報告書において「出願時」とし、本報告書には添付しない。
PCT規則70.16, 70.17)

☐ 出願時の国際出願書類

☒ 明細書 第 1-12, 14-22, 24-54 ページ、 出願時に提出されたもの
明細書 第 _____ ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの
明細書 第 13, 23 ページ、 08.12.03 付の書簡と共に提出されたもの

☒ 請求の範囲 第 _____ 項、 出願時に提出されたもの
請求の範囲 第 _____ 項、 PCT 19条の規定に基づき補正されたもの
請求の範囲 第 _____ 項、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの
請求の範囲 第 1, 6, 7, 10, 22-42 項、 20.10.03 付の書簡と共に提出されたもの

☐ 図面 第 _____ ページ/図、 出願時に提出されたもの
図面 第 _____ ページ/図、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの
図面 第 _____ ページ/図、 _____ 付の書簡と共に提出されたもの

☐ 明細書の配列表の部分 第 _____ ページ、 出願時に提出されたもの
明細書の配列表の部分 第 _____ ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの
明細書の配列表の部分 第 _____ ページ、 _____ 付の書簡と共に提出されたもの

2. 上記の出願書類の言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願の言語である。

上記の書類は、下記の言語である _____ 語である。

- ☐ 国際調査のために提出されたPCT規則23.1(b)にいう翻訳文の言語
☐ PCT規則48.3(b)にいう国際公開の言語
☐ 国際予備審査のために提出されたPCT規則55.2または55.3にいう翻訳文の言語

3. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際予備審査報告を行った。

- ☐ この国際出願に含まれる書面による配列表
☐ この国際出願と共に提出された磁気ディスクによる配列表
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出された書面による配列表
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出された磁気ディスクによる配列表
☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった
☐ 書面による配列表に記載した配列と磁気ディスクによる配列表に記載した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

4. 補正により、下記の書類が削除された。

☐ 明細書 第 _____ ページ
☒ 請求の範囲 第 2-5, 8, 9, 11-21 項
☐ 図面 図面の第 _____ ページ/図

5. ☐ この国際予備審査報告は、補充欄に示したように、補正が出願時における開示の範囲を越えてされたものと認められるので、その補正がされなかったものとして作成した。(PCT規則70.2(c) この補正を含む差し替え用紙は上記1.における判断の際に考慮しなければならない、本報告に添付する。)

V. 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条(PCT35条(2))に定める見解、それを裏付ける文献及び説明

1. 見解

新規性(N)	請求の範囲	1, 6, 7, 10, 22-42	有
	請求の範囲		無
進歩性(IS)	請求の範囲		有
	請求の範囲	1, 6, 7, 10, 22-42	無
産業上の利用可能性(IA)	請求の範囲	1, 6, 7, 10, 22-42	有
	請求の範囲		無

2. 文献及び説明(PCT規則70.7)

- 文献1: US 5491210 A
(Kimberly-Clark Corporation)
1996. 02. 13
- 文献2: US 5489451 A
(Roehm GmbH Chemische Fabrik)
1996. 02. 06
- 文献3: WO 96/15159 A1
(SHELL INTERNATIONALE RESEARCH
MAATSCHAPPU B.V.)
1996. 05. 23
- 文献4: JP 2000-001529 A (横浜ゴム株式会社)
2000. 01. 07
- 文献5: JP 2001-081240 A (横浜ゴム株式会社)
2001. 03. 27
- 文献6: JP 61-205447 A (不二製油株式会社)
1986. 09. 11
- 文献7: EP 134649 A2
(NATIONAL RESEARCH DEVELOPMENT
CORPORATION)
1986. 03. 20
- 文献8: JP 2000-281805 A (ダイセル化学工業株式会社)
2000. 10. 10

請求項1, 6, 7, 10, 22-42は、国際調査報告で引用した文献1-8により進歩性を有しない。文献1-5, 7, 8には、熱可逆的な架橋構造を形成する官能基を導入することにより、成形物に一定の機械的強度と繰り返し成形加工性を付与した熱可塑性樹脂の構成が示されている。前記熱可逆的な架橋構造としては、文献1にはウレタン結合、文献2-4にはディールスアルダー型の結合、文献5にはカルボキシル基-ビニルエーテル基反応型の結合、文献7, 8にはイオン結合が示されており、前記樹脂の主鎖としては、文献1には生分解性を有すると考えられる脂肪族ポリエーテル及び脂肪族ポリエステル、文献7, 8には同じく生分解性を有すると考えられる多糖類を用いることが記載されている。また、文献6には、生分解性を有する高分子化合物である多糖類及び蛋白が熱可逆的な架橋構造を形成する樹脂であることが示されている。

補充欄 (いずれかの欄の大きさが足りない場合に使用すること)

第 V 欄の続き

よって、前記公知の文献に示されているような熱可逆的な架橋構造を形成する官能基と公知の生分解性樹脂の主鎖構造とを組み合わせることは、当業者が容易に想到し得た程度のことである。そして、本願発明の効果について検討しても、引用文献1-8の記載から当業者が十分予測し得る程度のものであって、特定の官能基と主鎖構造との組み合わせに基づいて予期し得ない顕著な相乗効果がもたらされたものとは認められない。

橋部位の結合反応および開裂反応は温度変化により可逆的に進行する。なお、第1官能基および第2官能基は、異なる官能基でも良いし同じ官能基でも良い。同一の2つの官能基が対称的に結合して架橋を形成する場合、同一の官能基を第1官能基および第2官能基として使用できる。

冷却により結合して架橋部位を形成し、加熱により開裂する可逆的な反応形式は特に制限されないが、樹脂物の生産性、樹脂物の成形性、成形体の性能（機械的特性および耐熱性など）などの観点から、以下より選択されることが望ましい。

(1) ディールスーアルダー型架橋

ディールスーアルダー〔4+2〕環化反応を利用する。共役ジエン及びジエノフィルを官能基として導入することにより、熱可逆的架橋を形成する生分解性樹脂を得る。共役ジエンとしては、例えば、フラン環、チオフェン環、ピロール環、シクロペンタジエン環、1,3-ブタジエン、チオフェエン-1-オキサイド環、チオフェエン-1,1-ジオキサイド環、シクロペンタ-2,4-ジエノン環、2Hピラン環、シクロヘキサ-1,3-ジエン環、2Hピラン-1-オキサイド環、1,2-ジヒドロピリジン環、2Hチオピラン-1,1-ジオキサイド環、シクロヘキサ-2,4-ジエノン環、ピラン-2-オン環およびこれらの置換体などを官能基として用いる。ジエノフィルとしては、共役ジエンと付加的に反応して環式化合物を与える不飽和化合物を用いる。例えば、ビニル基、アセチレン基、アリル基、ジアゾ基、ニトロ基およびこれらの置換体などを官能基として用いる。また、上記共役ジエンもジエノフィルとして作用する場合がある。

これらの中でも、例えば、シクロペンタジエンを架橋反応に用いることができる。ジシクロペンタジエンは共役ジエン及びジエノフィルの両作用を有する。

ソシアネート、2, 6-トリレンジイソシアネート、4, 4'-ジフェニルメタンジイソシアネート、2, 4'-ジフェニルメタンジイソシアネート、p-フェニレンジイソシアネート等の芳香族ジイソシアネート、ヘキサメチレンジイソシアネート等の脂肪族ジイソシアネート、イソホロンジイソシアネート等の脂環式ジイソシアネート、キシリレンジイソシアネート等のアリアル脂肪族ジイソシアネート等が挙げられる。

アズラクトン基を有する架橋剤としては、例えば、ビスアズラクトンブタン、ビスアズラクトンベンゼン、ビスアズラクトンヘキサンが挙げられる。

ニトロソ基を有する架橋剤としては、例えば、ジニトロソプロパン、ジニトロソヘキサン、ジニトロソベンゼン、ジニトロソトルエンが挙げられる。

(架橋構造の選択)

冷却により結合して架橋部位を形成し、加熱により開裂する可逆的な反応の形式としては、上述の様に、ディールス-アルダー型、ニトロソ2量体型、酸無水物エステル型、ハロゲン-アミン型、ウレタン型、アズラクトン-ヒドロキシアリール型およびカルボキシル-アルケニルオキシ型などを利用できるが、熱分解および加水分解などで生分解性樹脂の主鎖が劣化する化学反応は避けた方が良い場合もある。特に、酸無水物エステル型のような架橋を形成する際に、フリーのカルボン酸を生成するような反応は避けた方が良い場合もある。しかしながら、生分解速度を早くしたい場合は、むしろカルボン酸を生じるような反応の方が好ましい場合もある。また、ハロゲン-アミン型の反応の場合、ハロゲンを含むことから焼却時にダイオキシン類を生じる恐れもある。何れにしても、反応形式の選択は、注意深く行う必要がある。

架橋部分の解離温度は、成形体の100℃以下の使用温度領域において十分な架橋が形成されるために、120℃を越えることが好ましい。一方、生分解

請 求 の 範 囲

1. (補正後) 冷却により共有結合し、加熱により開裂する熱可逆的な架橋構造を形成する官能基を有する生分解性樹脂であり、

前記官能基は、成型物として使用する温度において共有結合し、120℃を越えかつ成形温度以下の温度において開裂する熱可逆的な前記架橋構造を形成し

、

前記共有結合は、ディールスーアルダー型およびカルボキシル-アルケニルオキシ型の少なくとも何れか一方であることを特徴とする生分解性樹脂。

2. (削除)

3. (削除)

4. (削除)

5. (削除)

6. (補正後) 前記官能基は、ヒドロキシル基、カルボキシル基、アルケニル基、アルケニルオキシ基、共役二重結合を有する基からなる群より選ばれる1種以上の基であることを特徴とする請求項1記載の生分解性樹脂。

7. (補正後) 前記生分解性樹脂は、ヒドロキシル基、カルボキシル基およびアミノ基からなる群より選ばれる1種以上の官能基を有するポリエステル類または該ポリエステル類の変性体であることを特徴とする請求項1又は6記載の生分解性樹脂。

8. (削除)

9. (削除)

10. (補正後) 前記生分解性樹脂は、ヒドロキシル基、カルボキシル基およびアミノ基からなる群より選ばれる1種以上の官能基を有するポリオール類または該ポリオール類の変性体であることを特徴とする請求項1又は6記載の生分解性樹脂。

11. (削除)

1 2. (削除)

1 3. (削除)

1 4. (削除)

1 5. (削除)

1 6. (削除)

1 7. (削除)

18. (削除)

19. (削除)

20. (削除)

21. (削除)

22. (追加) 冷却により共有結合し、加熱により開裂する熱可逆的な架橋構造を形成する官能基を有する生分解性樹脂であり、
前記生分解性樹脂は、ヒドロキシル基、カルボキシル基およびアミノ基からなる群より選ばれる1種以上の官能基を有するポリアミノ酸類または該ポリアミノ酸類の変性体であることを特徴とする生分解性樹脂。

23. (追加) 冷却により共有結合し、加熱により開裂する熱可逆的な架橋構造を形成する官能基を有する生分解性樹脂であり、
前記生分解性樹脂は、ヒドロキシル基、カルボキシル基およびアミノ基からなる群より選ばれる1種以上の官能基を有する多糖類または該多糖類の変性体であることを特徴とする生分解性樹脂。

24. (追加) 冷却により共有結合し、加熱により開裂する熱可逆的な架橋構造を形成する官能基を有する生分解性樹脂であり、
前記生分解性樹脂は、ポリ乳酸または該ポリ乳酸の変性体であることを特徴とする生分解性樹脂。

25. (追加) 冷却により共有結合し、加熱により開裂する熱可逆的な架橋構造を形成する官能基を有する生分解性樹脂であり、
前記生分解性樹脂は、ポリブチレンサクシネートまたは該ポリブチレンサクシネートの変性体であることを特徴とする生分解性樹脂。

26. (追加) 前記生分解性樹脂は3次元架橋構造を有しており、該3次元架橋構造の架橋密度は0.0001～1であることを特徴とする請求項1、6、7、10及び22乃至25何れかに記載の生分解性樹脂。

27. (追加) 前記生分解性樹脂の主鎖は、直線状または分岐状の少なくとも何れか一方の構造を有することを特徴とする請求項1、6、7、10及び22乃至26何れかに記載の生分解性樹脂。

28. (追加) 前記生分解性樹脂の末端または側鎖の少なくとも何れか一方で、同一部位に1つ又は2つ以上の前記官能基が存在していることを特徴とする請求項1、6、7、10及び22乃至27何れかに記載の生分解性樹脂。

29. (追加) 静電結合性で熱可逆的な架橋構造を併用することを特徴とする請求項1、6、7、10及び22乃至28何れかに記載の生分解性樹脂。

30. (追加) 冷却により共有結合し、加熱により開裂する熱可逆的な架橋構造を形成する官能基を有する生分解性樹脂であり、
静電結合性で熱可逆的な架橋構造を併用することを特徴とする生分解性樹脂。

31. (追加) 前記共有結合は、ディールスーアルダー型、ニトロソ2量体型、酸無水物エステル型、ハロゲン－アミン型、ウレタン型、アズラクトン－ヒドロキシアリール型およびカルボキシル－アルケニルオキシ型からなる群より選ばれる1種以上の形式であることを特徴とする請求項30記載の生分解性樹脂。

32. (追加) 前記官能基は、ヒドロキシル基、カルボキシル基、アミノ基、ヒドロキシアリール基、アルケニル基、アルケニルオキシ基、ニトロソ基、ハロゲン、共役二重結合を有する基、酸無水物構造を有する基、イソシアナート構造を有する基およびアズラクトン構造を有する基からなる群より選ばれる1種以上の基であることを特徴とする請求項30又は31記載の生分解性樹脂。

33. (追加) 前記官能基は、成型物として使用する温度において共有結合し、120℃を越えかつ成形温度以下の温度において開裂する熱可逆的な前記架橋構造を形成することを特徴とする請求項30記載の生分解性樹脂。

34. (追加) 前記共有結合は、ディールスーアルダー型およびカルボキシル－アルケニルオキシ型の少なくとも何れか一方であることを特徴とする請求項33記載の生分解性樹脂。

35. (追加) 前記官能基は、ヒドロキシル基、カルボキシル基、アルケニル基、アルケニルオキシ基、共役二重結合を有する基からなる群より選ばれる

1 種以上の基であることを特徴とする請求項 3 3 又は 3 4 記載の生分解性樹脂

。

3 6. (追加) 冷却により共有結合し、加熱により開裂する熱可逆的な架橋構造を形成する第 1 官能基を有する第 1 生分解性樹脂と、

冷却により該第 1 官能基と共有結合し、加熱により開裂する熱可逆的な架橋構造を形成する第 2 官能基を有する第 2 生分解性樹脂と

を含む生分解性樹脂組成物であり、

前記第 1 生分解性樹脂は、請求項 1、6、7、10 及び 22 乃至 35 何れかに記載の生分解性樹脂であることを特徴とする生分解性樹脂組成物。

3 7. (追加) 前記第 1 官能基および前記第 2 官能基は、同一であることを特徴とする請求項 3 6 記載の生分解性樹脂組成物。

3 8. (追加) 冷却により共有結合し、加熱により開裂する熱可逆的な架橋構造を形成する第 1 官能基を有する第 1 生分解性樹脂と、

冷却により該第 1 官能基と共有結合し、加熱により開裂する熱可逆的な架橋構造を形成する第 2 官能基を有するリンカーと

を含む生分解性樹脂組成物であり、

前記第 1 生分解性樹脂は、請求項 1、6、7、10 及び 22 乃至 35 何れかに記載の生分解性樹脂であることを特徴とする生分解性樹脂組成物。

3 9. (追加) 前記リンカーは同一の第 2 官能基を 2 以上有することを特徴とする請求項 3 8 記載の生分解性樹脂組成物。

40. (追加) 請求項 1、6、7、10 及び 22 乃至 35 何れかに記載の生分解性樹脂、又は請求項 36 乃至 39 何れかに記載の生分解性樹脂組成物を含む生分解性成形体。

41. (追加) 冷却により共有結合し加熱により開裂する第 1 官能基および第 2 官能基が該共有結合した構造と、第 3 官能基とを有する架橋剤と、該第 3 官能基の反応する部位を有する生分解性樹脂材料とを該反応させる工程を含む請求項 1、6、7、10 及び 22 乃至 35 何れかに記載の生分解性樹脂の製造方法。

42. (追加) 冷却により共有結合し、加熱により開裂する熱可逆的な架橋構造を形成する第 1 官能基を有する第 1 生分解性樹脂と、冷却により該第 1 官能基と共有結合し、加熱により開裂する熱可逆的な架橋構造を形成する第 2 官能基を 2 以上有するリンカーとを該架橋させる工程を含む生分解性樹脂の製造方法であり、前記第 1 生分解性樹脂は、請求項 1、6、7、10 及び 22 乃至 35 何れかに記載の生分解性樹脂である生分解性樹脂の製造方法。